

# VU Research Portal

## Ramsey-comb spectroscopy

Morgenweg, J.

2014

### **document version**

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

### **citation for published version (APA)**

Morgenweg, J. (2014). *Ramsey-comb spectroscopy*. [PhD-Thesis - Research and graduation internal, Vrije Universiteit Amsterdam].

### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

### **Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

### **E-mail address:**

[vuresearchportal.ub@vu.nl](mailto:vuresearchportal.ub@vu.nl)

# SAMENVATTING

De Nederlandse titel van dit proefschrift is “Ramsey-kamspectroscopie”.

De meest nauwkeurige absolute metingen die we kunnen uitvoeren zijn tijd- of frequentiemetingen, simpelweg omdat de fysische eenheid van de seconde de meest accuraat gedefinieerde SI-eenheid is. Sinds 1967 is de seconde gedefinieerd als de duur van 9,192,631,770 periodes van een hyperfijnovergang in  $^{133}\text{Cs}$ , en commerciële producten zijn beschikbaar voor de distributie van deze frequentiestandaard op een niveau van  $10^{-13}$  in vele metrologielaboratoria over de wereld. Met behulp van optische frequentiekammen (FK), gebaseerd op gepulste lasers, kan deze bijzondere nauwkeurigheid overgebracht worden van het microgolfdomein naar optische frequenties, en dus hoge-precisie spectroscopie op atomaire en moleculaire systemen mogelijk maken. Buiten het gebruik als ij-kingsgereedschap voor het kalibreren van continue lasers kunnen FK's ook zelf gebruikt worden als spectroscopielasers. Deze succesvolle techniek van directe FK-spectroscopie combineert een hoge nauwkeurigheid met de hoge laserintensiteiten en het grote golflengtebereik van gepulste laseroscillatoren. Er zijn echter vele toepassingen die nog hogere intensiteiten nodig hebben, bijvoorbeeld voor de excitatie van zeer zwakke overgangen of om de golflengtes van de FK naar spectrale gebieden over te brengen die onbereikbaar zijn voor oscillatoren zelf.

Om ultrahoge pulsintensiteiten en energieën te bereiken heeft onze groep een unieke aanpak gebruikt waarbij (twee) geselecteerde pulsen uit een FK-pulstrein coherent worden versterkt. Omdat het gemiddelde vermogen laag gehouden kan worden, maakt deze aanpak een significant grotere versterking mogelijk dan alternatieve methoden, zoals bijvoorbeeld gebaseerd op versterking op de volle repetitiefrequentie gecombineerd met verdere versterking in trilloltes. Ook al heeft de oorspronkelijke aanpak geleid tot de eerste hoge-precisiemetingen in het extreem-ultraviolette golflengtegebied  $<60\text{ nm}$ , toch moest er wat van de elegantie van de FK worden opgeofferd omdat alleen individuele, geïsoleerde overgangen gemeten konden worden en de nauwkeurigheid gelimiteerd werd door de maximale pulsafstand en faseverschuivingen bij het versterkingsproces. Om deze beperkingen te overwinnen is een nieuwe

methode ontwikkeld, “Ramsey-kamspectroscopie”, die geïntroduceerd en gedemonstreerd wordt in dit proefschrift. Ondanks dat de Ramsey-kammethode nog steeds gebaseerd is op versterkte FK-pulsparen, biedt de nieuwe mogelijkheid om de vertraging tussen pulsen coherent te veranderen over een groot bereik een fundamentele nieuwe methode om spectroscopische signalen te meten en analyseren. We laten zien dat de combinatie van hoge-energie laserpulsen met de nauwkeurigheid en resolutie van FK’s zorgt voor een extreem veelzijdig gereedschap voor hoge-precisie-spectroscopie. Een meer gedetailleerde introductie en motivatie voor het maken van pulsen met hoog piekvermogen wordt gegeven in Hfdst. 1, samen met een kort overzicht van het proefschrift, waarvan de inhoud wordt samengevat in de volgende paragrafen.

Om de technische en conceptuele uitdagingen van het werk efficiënt te kunnen bediscussiëren wordt eerst een overzicht van de relevante achtergrondinformatie gegeven in Hfdst. 2. Beginnend met de fundamentele vergelijkingen van Maxwell wordt het concept van temporele en spectrale vormen van laserpulsen afgeleid en toegepast om fysische effecten zoals propagatie en dispersie te bestuderen. Bij de overstap van enkele pulsen naar pulssequenties wordt één van de belangrijkste elementen van de Ramsey-kammethode geïntroduceerd, de optische FK, inclusief een discussie over hoe FK’s in de praktijk geïmplementeerd worden. Als laatste wordt de theorie van twee verschillende methoden voor het versterken van laserpulsen geïntroduceerd: Het concept van parametrische versterking, die het fase-coherent versterken van FK-pulsen mogelijk maakt, en de meer conventionele versterking in laserversterkingsmedia, die wordt gebruikt om “pomp”-pulsen met hoge energie te genereren voor de parametrische versterking.

Het realiseren van Ramsey-kamspectroscopie vereist een complex experimenteel lasersysteem voor het produceren van hoge-energie laserpulsparen met variabele vertraging. De beschrijving van het systeem begint in Hfdst. 3, die een gedetailleerde discussie bevat van het *pomp*-versterkersysteem voor het produceren van pulsparen met hoge energie voor de parametrische versterker. Eerst wordt de door ons gebouwde passief-“modengekoppelde” gepulste pomp-oscillator beschreven waarvan de pulsduur en centrale golflengte aangepast kan worden. Van de volledige pulstrein worden twee pulsen geselecteerd op een variabele tijdsafstand via programmeerbare pulskiezers. Daarna worden deze pulsen versterkt in een tweetraps-voorversterker met hoge versterking die de pulsenergie opstuwt van minder dan 100 pJ tot het 1 mJ-niveau. De voorversterker wordt gevolgd door een flitslamp- of diodegepompte

naversterker. Het laserversterkingssysteem is in staat om 1064 nm pomp-pulsparen op 100 mJ-niveau te produceren met een vertraging tussen de pulsen die kan oplopen tot vele microseconden, in stappen van de omlooptijd ( $\sim 8$  ns) van de hoofd-pomposcillator. Bovendien kan de tijd tussen pulsen snel veranderd worden terwijl het optische pad in de versterker hetzelfde blijft, waarmee golffrontverstoringen geminimaliseerd worden voor de tweede pomppuls als functie van de vertragingstijd.

De versterkte pulsparen van het systeem wat beschreven wordt in Hfdst. 3 kunnen worden gebruikt om een optische parametrische versterker mee te pompen, die op zijn beurt selectief pulsparen van een gesynchroniseerde frequentiekamoscillator versterkt die op dezelfde repetitiefrequentie opereert als de oscillator van het pomplasersysteem. De prestaties van het parametrische-versterkersysteem, in het bijzonder de fasestabiliteit van de tot mJ-niveau versterkte pulsen, is het hoofd-onderwerp van Hfdst. 4. Als eerste wordt de zelfgebouwde Ti:saffier-FK beschreven die dienst doet als beginpunt (“kiem”) voor de parametrische versterker. Een technisch overzicht van het parametrische-versterkersysteem en de opstelling voor de elektronische synchronisatie wordt dan gevolgd door een uitgebreide studie via zowel numerieke simulaties als directe metingen van de faseverschuiving die geïntroduceerd wordt door de versterker. Het wordt bevestigd dat zelfs als de versterkte FK-pulsen een differentieel faseverschil hebben van 100 mrad, dat dit faseverschil afdoende constant blijft wanneer de tijdafstand tussen de pulsen veranderd wordt. Dit belangrijke resultaat maakt het experimentele systeem geschikt voor Ramsey-kamspectroscopie met hoge nauwkeurigheid.

Na de gedetailleerde beschrijving van het ontwikkelde lasersysteem, laat Hfdst. 5 zien wat de mogelijkheden zijn van Ramsey-kamspectroscopie via een meting van complexe twee-fotonovergangen in atomair rubidium en cesium. Vanwege de goede signaal-ruisverhouding, en een configuratie met laserbundels in tegenovergestelde richting om Doppler-verbreding te reduceren, kunnen Ramsey-signalen verkregen worden op meer dan 40 verschillende macrovertragingen (in stappen van 8 ns), wat in het geval van rubidium meer dan vier keer de levensduur van de bovenste toestand is. Met behulp van een nieuw tijddomein-fit-algoritme worden de frequenties van de aangeslagen overgangen bepaald met een nauwkeurigheid beter dan 10 kHz, inclusief systematische onzekerheden. Voor de zwakke overgangen in cesium is dit een meer dan dertigvoudige verbetering van eerdere spectroscopische resultaten. Dit laat zien dat de Ramsey-kammethode traditionele vormen van spectroscopie kan overtr-

effen bij overgangen die te zwak zijn om makkelijk geëxciteerd te worden met conventionele onversterkte FK's (of continue lasers).

Na de eerste introductie in het vorige hoofdstuk, wordt een uitgebreider analytisch raamwerk gepresenteerd van de Ramsey-kammethode in Hfdst. 6. Beginnend met Ramsey's originele afgeleide vergelijking die het exciteren met gescheiden oscillerende velden beschrijft, worden Ramsey-signalen met verschillende macrovertragingen gecombineerd op een globale tijdas. In het frequentiedomein kan deze combinatie van individuele meetresultaten gebruikt worden om een "synthetisch" excitatiespectrum af te leiden dat lijkt op spectra die verkregen worden met traditionele directe-kamspectroscopie. Echter, er wordt gedemonstreerd dat in tegenstelling tot traditionele FK-spectra, de spectrale analyse beïnvloed wordt door extra interferenties die de frequentiebepaling ernstig compliceren als er meer dan één resonantie aangeslagen wordt. Gelukkig blijkt de tijddomein-analyse een stuk robuuster te zijn omdat die alleen op de temporele fases van de individuele Ramsey-metingen berust. Dit heeft als extra voordeel dat het niet gevoelig is voor algemene spectraal-lijnverbredingseffecten en (overgangsonafhankelijke) constante faseverschuivingen zoals door het versterkingsproces, of het AC-Stark-effect als gevolg van de excitatiepulsen zelf. Als laatste worden de prestaties van het tijddomein-fitten onderzocht via numerieke simulaties voor verschillende parameterverzamelingen, inclusief gevallen van overgangsafhanke-lijke verbredingsmechanismen en faseveranderingen. Binnen de simulatieonnauwkeurigheden van een paar kHz worden geen aanzienlijke systematische effecten op de fitresultaten gevonden.

Het proefschrift wordt afgerond met een vooruitblik in Hfdst. 7 waarin mogelijke verbeteringen van het experimentele systeem worden beschreven, evenals interessante toekomstige doelen voor Ramsey-kam-spectroscopie zoals  $\text{H}_2$  en  $\text{He}^+$ .